

# THERMOSETTING ADHESIVE FILM, MULTILAYER PRINTED WIRING BOARD AND ITS PRODUCING METHOD

Patent number: JP2003243835  
 Publication date: 2003-08-29  
 Inventor: TANABE MARI; OBATA KAZUHITO; NAGAO KENICHI  
 Applicant: HITACHI CHEMICAL CO LTD  
 Classification:  
 - international: **H05K3/46; H05K3/46; (IPC1-7): H05K3/46**  
 - european:  
 Application number: JP20020037161 20020214  
 Priority number(s): JP20020037161 20020214

Report a data error here

## Abstract of JP2003243835

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a thermosetting adhesive film having a resin flow viscosity required for absorbing irregularities on the surface of a printed wiring board and for using in stacking system, a multilayer printed wiring board, and its producing method.

**SOLUTION:** The thermosetting adhesive film for bonding the stacked wiring boards of a multilayer printed wiring board is composed of a filmy resin composite and the resin flow viscosity is  $1.0E+3$ - $1.5E+4$  Pas at the time of stacking. The filmy resin composite is an epoxy resin composite containing a granular inorganic filler.

COPYRIGHT: (C)2003,JPO

	特種ワイヤー 添加量 (重量%)	樹脂組成		接着フィルム特性評価結果				
		硬化温度 (℃)	粘度 (Pa・s)	接着フロー特性 (Pa・s)	接着剤の 充填率	接着剤の 流動性	接着剤の 硬化性	接着剤の 硬化後
実施例1	0.30	180	40	$8.0E+3$	○	○	○	○
実施例2	0.50	140	50	$7.8E+3$	○	○	○	○
実施例3	0.60	140	50	$8.0E+3$	○	○	○	○
比較例1	0.30	110	10	$8.0E+2$	○	○	○	×
比較例2	0.50	180	50	$1.8E+4$	×	×	△	○
比較例3	0	140	50	$8.0E+2$	○	○	○	×
比較例4	1.20	140	50	$1.8E+4$	×	×	△	○

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-243835

(P2003-243835A)

(43)公開日 平成15年8月29日(2003.8.29)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

データベース(参考)

H 0 5 K 3/46

H 0 5 K 3/46

S 5 E 3 4 6

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 5 頁)

(21)出願番号 特願2002-37161(P2002-37161)

(22)出願日 平成14年2月14日(2002.2.14)

(71)出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72)発明者 田部 真理

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社五所宮事業所内

(72)発明者 小畑 和仁

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社五所宮事業所内

(74)代理人 110000062

特許業務法人第一国際特許事務所

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 熱硬化性接着フィルム及び多層化プリント配線板とその製造方法

## (57)【要約】

【課題】 配線板の表面にある凹凸を吸収し、積み上げ方式にて使用するのに必要な樹脂フロー粘度を有する熱硬化性接着フィルム及び多層化プリント配線板とその製造方法を提供する。

【解決手段】 フィルム状樹脂組成物からなり、積層された多層化プリント配線板の基板間を接着する熱硬化性接着フィルムであって、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である。フィルム状樹脂組成物がエポキシ樹脂組成物である。粒子状の無機フィラーを含有する。

	無機フィラー添加量 (重量部)	塗布条件		接着フィルム特性評価結果				
		乾燥温度 (℃)	乾燥率 (%)	樹脂フロー粘度 (Pa·s)	切斷粉発生の有無	凹凸吸収性	密着性	樹脂のしみ出し
実施例1	800	130	40	$5.0E+3$	無	○	○	○
実施例2	800	140	50	$7.5E+3$	無	○	○	○
実施例3	900	140	50	$9.0E+3$	無	○	○	○
比較例1	800	110	10	$6.0E+2$	無	○	○	×
比較例2	800	160	80	$1.6E+4$	有	×	△	○
比較例3	0	140	50	$8.0E+2$	無	○	○	×
比較例4	1200	140	50	$1.8E+4$	有	×	△	○

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 フィルム状樹脂組成物からなり、積層された多層化プリント配線板の基板間を接着する熱硬化性接着フィルムであって、

積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であることを特徴とする熱硬化性接着フィルム。

【請求項2】 上記フィルム状樹脂組成物がエポキシ樹脂組成物である請求項1記載の熱硬化性接着フィルム。

【請求項3】 粒子状の無機フィラーを含有する請求項1記載の熱硬化性接着フィルム。

【請求項4】 上記無機フィラーの含有量が、接着フィルムの全成分重量を100重量部として10～90重量部である請求項3記載の熱硬化性接着フィルム。

【請求項5】 重量平均分子量5万以上で、粘度 $1000 \sim 10000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 、かつ、分散度( $M_w/M_n$ )3～5のゴム成分を有する請求項3又は4に記載の熱硬化性接着フィルム。

【請求項6】 複数の基板が積層された多層化プリント配線板であって、少なくとも一つの基板間に、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である熱硬化性接着フィルムを有することを特徴とする多層化プリント配線板。

【請求項7】 複数の基板を積層して多層化プリント配線板を製造する方法であって、少なくとも一つの基板間に、樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である熱硬化性接着フィルムを設けて複数の基板を積層する工程と、積層した複数の基板を加熱する工程とを備えることを特徴とする多層化プリント配線板の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、熱硬化性接着フィルム及び多層化プリント配線板とその製造方法であり、特にプリント配線板の多層化を行うにあたり、表面に凹凸のある配線板の表面に積み上げ方式にて使用する多層板層間用接着フィルムに関する。

## 【0002】

【従来の技術】接着フィルムは、その扱い易さ、加工性等の特長を生かし、各種基材の接着等に使用されている。接着フィルムは、ポリイミド等のフィルム材料、金属、シリコン、セラミック等の異種材料を接着するため、応力緩和を目的として低弾性にしたもの、また、搭載部品の高密度化による基板放熱対策のため、フィラーを混合し、熱伝導性を向上したもの等、いろいろな種類が市販されている。さらに、その取り扱い性・絶縁信頼性が良好なことから、近年においては、プリプレグ的使われ方も提案されている。

【0003】現行の多層板積層用接着フィルムにはプリ

プレグが使用されているが、プリプレグを使用した場合、接着層が薄いことや吸湿後の密着性の確保が困難であり、また、ガラスクロスがあるため、接着層の流れ性（樹脂フロー性）が乏しい。そのため、回路加工等が施された平滑でない面等の接着（回路埋め込み）では、回路の段差を埋め込むことができずにボイドが発生し、はんだ付け等の高温処理時にふくれ、剥がれ等が発生する等の問題がある。以上のことにより、現行のプリプレグでは、基板表面の凹凸の吸収は難しい。さらに現行の接着フィルムの中でも、凹凸吸収性・絶縁信頼性等全てをクリアしている接着フィルムは存在しない。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来の問題を解決するものであり、配線板の表面にある凹凸を吸収し、積み上げ方式にて使用するのに必要な樹脂フロー粘度を有する熱硬化性接着フィルム及び多層化プリント配線板とその製造方法を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するために、本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 (\times 10^3) \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である半硬化状態のフィラー入りフィルム状樹脂組成物が、本発明の目的を達し得ることを見出した。

【0006】即ち、本発明は、フィルム状樹脂組成物からなり、積層された多層化プリント配線板の基板間を接着する熱硬化性接着フィルムであって、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である熱硬化性接着フィルムである。

【0007】また、本発明は、上記フィルム状樹脂組成物がエポキシ樹脂組成物である熱硬化性接着フィルムである。

【0008】そして、本発明は、粒子状の無機フィラーを含有する熱硬化性接着フィルムである。

【0009】更に、本発明は、上記無機フィラーの含有量が、接着フィルムの全成分重量を100重量部として10～90重量部である熱硬化性接着フィルムである。

【0010】また、本発明は、重量平均分子量5万以上で、粘度 $1000 \sim 10000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 、かつ、分散度( $M_w/M_n$ )3～5のゴム成分を有する熱硬化性接着フィルムである。

【0011】そして、本発明は、複数の基板が積層された多層化プリント配線板であって、少なくとも一つの基板間に、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である熱硬化性接着フィルムを有する多層化プリント配線板である。

【0012】更に、本発明は、複数の基板を積層して多層化プリント配線板を製造する方法であって、少なくとも一つの基板間に、樹脂フロー粘度が $1.0E+3 \sim 1.5E+4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である熱硬化性接着フィルムを設

けて複数の基板を積層する工程と、積層した複数の基板を加熱する工程とを備える多層化プリント配線板の製造方法である。

【0013】

【発明の実施の形態】本発明の実施の形態を説明する。本発明の熱硬化性接着フィルムにおけるフィルム状樹脂組成物は、例えばエポキシ樹脂であり、特に制限するものではないが、好ましくはエポキシ当量250以下の室温で液状の物が好ましい。エポキシ当量250以下、かつ、室温で液状のエポキシ樹脂を使用することにより、凹凸吸収性の向上が図れ、さらに作業上に有利である。このようなエポキシ樹脂は市販されており、例えば、油化シェル製、商品名：エピコート815、828、大日本インキ化学製、商品名：エピクロン840、850等がある。

【0014】エポキシ樹脂の硬化成分としては、硬化剤と硬化促進剤に分けることが出来る。硬化剤は、特に制限される物はなく、通常用いられるアミン系、酸無水物、フェノール系等が使用できる。半硬化時の加工性からフェノール系硬化剤が好ましく、エポキシ成分のエポキシ当量とフェノール樹脂の水酸基当量が1：1、2の当量比で添加することが望ましい。

【0015】このような硬化剤としては、フェノールノボラックとして、日立化成工業製、商品名：VP-6371、大日本インキ製、商品名：LF-2882等がある。また、硬化促進剤としては、各種イミダゾール類を使用することが望ましい。イミダゾールとしては、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-4-フェニルイミダゾール等が挙げられ、その市販品として、四国化成工業製、商品名：2E4MZ、2PZ、2PZ-CN、2PZ-CN S等がある。

【0016】本発明の熱硬化性接着フィルムにおいて、重量平均分子量が5万以上のゴムの添加は、硬化剤の密着性、耐湿性、凹凸吸収性を向上させ、さらには半硬化状態での膜特性（加工性）の確保を容易にする。エポキシ樹脂及び硬化成分の合計を100重量部としたとき、ゴム成分の添加量は100～150重量部が好ましい。100重量部未満の添加では、半硬化時に基材フィルムから剥離する時に割れ等の現象が発生し、取り扱いづらい。また150重量部を超えると、硬化物の熱特性が急激に低下し、熱圧着時の熔融粘度が低くなりすぎて樹脂フロー量が制御出来ないという問題がある。この重量平均分子量が5万以上のゴムとしては、天然ゴム、ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム、アクリルニトリル-ブタジエンゴム、エチレン-プロピレンゴム、アクリル-メタクリル系ゴム等の合成ゴム、ポリスチレン系、ポリオレフィン系、ポリ塩化ビニル系、ポリウレタン系等の熱可塑性エラストマ等が使用できる。上記合成ゴムの中でも、特にエポキシ基を導入したエポキシ変性

アクリルニトリル-ブタジエンゴムがエポキシ樹脂との相溶性の面から好ましい。

【0017】添加されるゴムは、粘度1000～10000mPa・sが好ましい。また、分散度(Mw/Mn)は3～5が好ましい。

【0018】上記接着剤組成物は、上記各成分以外に必要なに応じて各種成分をさらに配合することができる。それら各種成分としては、シランカップリング剤、潤滑剤等が挙げられる。シランカップリング剤は、接着フィルムの密着性を向上させる機能を有する。シランカップリング剤としては、日本ユニカー製、商品名：NUCA-1160、A-187、A-189等を使用することができる。

【0019】本発明の熱硬化性接着フィルムに添加する無機フィラーの材質は、絶縁性に優れた物であれば特に制限はなく、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、シリカ等が挙げられる。無機フィラーの添加量は、フィルムの樹脂成分を100重量部とした時10～90重量部が好ましい。添加量が10重量部未満では、積層時の樹脂フロー粘度が $1.0 \times 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ よりも小さくなって、凹凸を吸収する際に樹脂のしみ出しが多くなり、均一な膜厚が得られない。また、90重量部を超えると、①無機フィラーの樹脂成分で均一に充填することが難しい。②製膜時に気泡が混入し易くなる。③積層時の樹脂フローが難しくなる。以上の理由のため好ましくない。無機フィラーにシリカを用いると、誘電率が低くなり、高周波に適した接着フィルムとなる。

【0020】このような無機フィラーには、昭和電工製、商品名：AS-10、AS-20、AS-30、AS-40、AS-50、また、電気化学工業製、商品名：FB-25S、FB-255、FB-7SDC等がある。無機粒子については、分散性向上を目的に、シランカップリング剤等による表面改質品を使用してもよい。

【0021】本発明の熱硬化性接着フィルムは、上記接着剤組成物をフィルム状にし、熱処理した半硬化状態のものであり、基板積層時の樹脂フロー粘度が $1.0 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であるが、作製方法は、接着剤組成物を基材に塗布し、熱処理するのが有効である。接着剤組成物を基材に塗布するには、接着剤組成物を有機溶媒に溶解した溶液を用いるのが好ましい。有機溶剤としては、トルエン、メチルエチルケトン(MEK)、ジメチルホルムアミド(DMF)、ジメチルアセトアミド(DMAC)等が使用できる。基材としては、熱処理温度に耐えられるものであれば特に限定されるものではないが、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリイミド、ポリエチレン、銅箔等が好適である。

【0022】乾燥条件は、特に制限されないが、熱硬化性接着フィルムの乾燥率が20～60%になるようにす

るのが好ましく、それは上記熱処理条件を調整することにより達成できる。乾燥率が20%未満であると、凹凸を吸収する際に樹脂のしみ出しが多くなり均一な膜厚が得られず、作業性の悪化等の弊害を起こし易い。また、乾燥率が60%を超えると、凹凸の吸収が十分にできず、ボイドの発生や密着不良を起こし易い。また、高温、高压で接着する必要がある、作業効率の悪化につながる。

【0023】ここで、乾燥率が20～60%に設定された接着フィルムは、圧着温度170℃、圧着圧力40MPaで1時間硬化することにより、基板表面の凹凸吸収性及び密着性が硬化時、半硬化時共に優れた熱硬化性接着フィルムを得ることができる。積層条件は特に制限されないが、その使用する樹脂に最も適した積層条件を選択する。

【0024】次に、実施例により本発明の熱硬化性接着フィルムを説明するが、本発明はこの実施例に限定されるものではない。実施例1を説明する。エポキシ樹脂エポコート828を70重量部、硬化剤LF2882を40重量部、ゴム成分HTR-860P-3を60重量部、硬化促進剤2PZ-CNを0.5重量部、シランカップリング剤を5重量部、無機フィラーFB-25Sを600重量部混合した。MEKを溶媒とする樹脂固形分60%の樹脂組成物を離型処理したPET上に塗布し、130℃で10分乾燥して膜厚100μm、乾燥率40%のフィラー入り熱硬化性接着フィルムを作製した。

【0025】評価方法は、半硬化状態の接着フィルムの120℃での樹脂フロー粘度、25℃で切断加工時の切断片発生の有無を評価した。さらに、170℃、40MPaの圧力で1時間プレスして試験片を作製し、その凹凸吸収性（評価判定、○：全面が埋め込まれている、×：部分的に埋め込まれていない部分がある、又は全く埋め込まれていない）、密着性（評価判定、○：全面が密着、△：部分的に密着込していない部分がある、×：全く着かない）、及び樹脂のしみ出し（評価判定、○：しみ出し無し、△：部分的にしみ出している、×：全面的にしみ出している）を評価した。

【0026】その結果、本実施例1による熱硬化性接着フィルムは、凹凸を吸収するための接着フィルムとして、凹凸吸収性及び密着性が良好でしみ出しがなく、実用上使用できることが判った。これらの結果を図1にまとめて示す。

【0027】実施例2を説明する。乾燥温度140℃、乾燥率50%に変更する以外は、実施例1と同様の方法にて膜厚100μmの接着フィルムを作製し評価した。その結果、実施例2の熱硬化性接着フィルムも凹凸の吸収を目的とした接着フィルムとして、実用上使用できることが判った。これらの結果を実施例1と同様に図1に

まとめて示す。

【0028】実施例3を説明する。無機フィラー量を900部に変更する以外は、実施例2と同様の方法にて膜厚100μmの接着フィルムを作製し評価した。その結果、実施例3の熱硬化性接着フィルムも凹凸の吸収を目的とした接着フィルムとして、実用上使用できることが判った。これらの結果を実施例1と同様に図1にまとめて示す。

【0029】比較例1を説明する。乾燥温度を110℃に変更する以外は、実施例1と同様の方法で乾燥率10%の接着フィルムを作製した。本比較例1による接着フィルムは、評価において、樹脂フロー粘度の低下が見られ、全面的に樹脂がしみ出しており、作業性が悪く、凹凸の吸収を目的とした接着フィルムとして実用性がないと判断した。これらの結果を図1にまとめて示す。

【0030】比較例2を説明する。乾燥温度を160℃に変更する以外は、実施例1と同様の方法で乾燥率80%の接着フィルムを作製した。本比較例2の接着フィルムは、評価において、樹脂フロー粘度が高く、25℃での切断時にフィルムが割れ、切断粉が発生した。また凹凸吸収性、密着性とも満足しない部分が発生し、凹凸の吸収を目的とした接着フィルムとして実用性がないと判断した。これらの結果を図1にまとめて示す。

【0031】比較例3を説明する。無機フィラー量を0部（添加しない）に変更する以外は、実施例2と同様の方法で乾燥率50%の接着フィルムを作製した。本比較例3の接着フィルムは、評価において、樹脂フロー粘度の低下が見られ、部分的に樹脂がしみ出しており、作業性が悪く、凹凸吸収性を目的とした接着フィルムとして実用性がないと判断した。これらの結果を図1にまとめて示す。

【0032】比較例4を説明する。無機フィラー量を1200部に変更する以外は、実施例2と同様の方法で乾燥率50%の接着フィルムを作製した。本比較例4の接着フィルムは、評価において、樹脂フロー粘度が高く、25℃での切断時にフィルムが割れ、切断粉が発生した。また凹凸吸収性、密着性とも満足しない部分が発生し、凹凸吸収を目的とした接着フィルムとして実用性がないと判断した。これらの結果を図1にまとめて示す。

【0033】

【発明の効果】本発明によれば、配線板の表面にある凹凸を吸収し、積み上げ方式にて使用するのに必要な樹脂フロー粘度を有する熱硬化性接着フィルム及び多層化プリント配線板とその製造方法を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例及び比較例の物性、特性等を説明する図表。

【図1】

	無機フィラー添加量 (質量部)	塗布条件		接着フィルム特性評価結果						
		乾燥温度 (℃)	乾燥率 (%)	樹脂フロー粘度 (Pa・s)	切断発生の有無	凹眼性	凸眼性	割れ	剥離	耐しめし
実施例1	800	130	40	$5.0 \times 10^3$	無	○	○	○	○	○
実施例2	800	140	50	$7.5 \times 10^3$	無	○	○	○	○	○
実施例3	900	140	50	$9.0 \times 10^3$	無	○	○	○	○	○
比較例1	800	110	10	$6.0 \times 10^2$	無	○	○	○	×	×
比較例2	800	180	80	$1.8 \times 10^4$	有	×	×	△	○	○
比較例3	0	140	50	$8.0 \times 10^2$	無	○	○	○	×	×
比較例4	1200	140	50	$1.8 \times 10^4$	有	×	×	△	○	○

---

フロントページの続き

(72)発明者 長尾 賢一

Fターム(参考) 5E346 AA16 CC41 EE12 EE14

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化

成工業株式会社五所宮事業所内